

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents *will not* correct images,
Please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.

PAT-NO: JP363006808A
DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 63006808 A
TITLE: RARE EARTH PERMANENT MAGNET
PUBN-DATE: January 12, 1988

INVENTOR-INFORMATION:

NAME
OHASHI, TAKESHI
TAWARA, YOSHIO

INT-CL (IPC): H01F001/08, C22C038/00

US-CL-CURRENT: 148/302

ABSTRACT:

PURPOSE: To improve the coercive force of rare earth permanent magnet without increasing an expensive heavy rare earth elements by irregularly distributing elements including heavy rare earth element and aluminum in a base particles made of light rare earth element, B and Fe.

CONSTITUTION: 20~35% by weight of R (where R is at least one or more of light rare earth elements), 0.5~1.5% of B, 0.1~10% of L (where L is at least one of heavy rare earth elements including Y, and at least one or more of Al, Ti, V, Nb, Mo), and the residue of M (where M is Fe or a mixture of Fe and Co) are used to form an anisotropic sintered magnet. In this case, elements L are irregularly distributed in R<SB>2</SB>M<SB>14</SB>B base particles. For example, elements L exist irregularly in the vicinity of grain boundary in R<SB>1</SB>M<SB>14</SB>B base particles and an R-rich state.

COPYRIGHT: (C)1988,JPO&Japio

⑫ 公開特許公報(A) 昭63-6808

⑪ Int. Cl.⁴H 01 F 1/08
C 22 C 38/00

識別記号

3 0 3

庁内整理番号

7354-5E
D-7147-4K

⑬ 公開 昭和63年(1988)1月12日

審査請求 未請求 発明の数 1 (全4頁)

⑭ 発明の名称 希土類永久磁石

⑮ 特 願 昭61-149979

⑯ 出 願 昭61(1986)6月26日

⑰ 発 明 者 大 橋 健 福井県武生市北府2丁目1番5号 信越化学工業株式会社
磁性材料研究所内⑱ 発 明 者 俵 好 夫 福井県武生市北府2丁目1番5号 信越化学工業株式会社
磁性材料研究所内

⑲ 出 願 人 信越化学工業株式会社 東京都千代田区大手町2丁目6番1号

⑳ 代 理 人 弁理士 山本 亮一

明 細 書

1. 発明の名称

希土類永久磁石

2. 特許請求の範囲

1. 重量百分比で20~35%のR(ただし、Rは軽希土類元素の少なくとも1種以上)と、0.5~1.5%のBと、0.1~10%のL(ただし、LはYを含む重希土類元素およびAl、Ti、V、Nb、Moの内の少なくとも1種以上)と、残部M(ただし、MはFeまたはFeとCoとの混合物)よりなる異方性焼結磁石であって、L元素が R_2M_{14} B母相粒内で不均一に分布していることを特徴とする希土類永久磁石。
2. L元素が R_2M_{14} B母相粒内の粒界近傍に偏在していることを特徴とする特許請求の範囲第1項に記載の希土類永久磁石。
3. L元素が R_2M_{14} B母相粒内の粒界近傍とRリッチ相とに偏在していることを特徴とする特許請求の範囲第1項に記載の希土類永久磁石。

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は、各種電気、電子機器材料に有用な磁気特性にすぐれた希土類永久磁石に関するものである。

(従来技術とその問題点)

希土類磁石の内、Nd-Fe-B系磁石は高い磁気特性を有し、Sm-Co系磁石と比べて資利的にも有利なため近年大変注目されている(特開昭59-48008号)。しかし、この磁石にはキュリー点 T_c が低い($Nd_2Fe_{14}B$ で312℃以下)ため、磁気特性の温度による影響が大きく、高温での使用に制約があった。とくに、保磁力 iH_c の温度上昇による低下が大きく、このままでは使用に適さないため、これに適当な添加物を加えて室温での保磁力を高め、昇温によってその値が低下しても使用に支障を来さない程度に維持できるようにする試みがなされ、その添加物としてDy、Tb、Hoなどの重希土類元素、Ti、V、Nb、Moのような遷移金属やAlが使用されている(特開昭59-89401号および同80-32308号)。

一方、これらの添加物は保磁力を増大させるが、残留磁束密度 B_r は低下させるため、添加量をなるべく少なくするよう添加物の種類の組合せや量を選択する必要があった。とくに、重希土類元素は保磁力の増大効果が大きいという利点がある反面、鉄と重希土類元素の磁気モーメントが反平行に揃うために残留磁束密度の低下が大きく、また資源量が少ないために非常に高価であることから、出来るだけその使用割合を節減することが望まれていた。

(問題点を解決するための手段)

本発明は、高価な重希土類元素の使用量を抑制し、高い磁気特性を有する希土類永久磁石を提供することを目的とし、重量百分比で20~35%のR(ただし、Rは軽希土類元素の少なくとも1種以上)と、0.5~1.5%のBと、0.1~10%のL(ただし、LはYを含む重希土類元素およびAl、Ti、V、Nb、Moの内の少なくとも1種以上)と、残部M(ただし、MはFeまたはFeとCoとの混合物)よりなる異方性焼結磁石であって、

た結果本発明に到達したもので、本発明による粒界制御の要点は、得られる磁石の保磁力に影響を与える粒界近傍のみに、保磁力を高める効力を持つ元素が偏在した組織を作ることにある。

このためには母相を構成する成分元素と添加元素とを別々に溶解、固化した後、両者を混合粉碎し、常法によりプレスし、焼結することにより達成される。これに用いられる添加元素は、例えばAl粉、Nb粉のような単体元素の粉でも良いし、 Dy_2O_3 粉、 Tb_4O_7 粉のような酸化物の粉であっても良い。

また、例えばDy-Alとか、Tb-Feのような化合物として使用しても良い。これらの添加物は焼結の際 $R_2Fe_{14}B$ 母相に表面より拡散していくが、結晶粒中心部までは拡散せず粒界近傍に偏在した組織を形成する。

本発明による希土類永久磁石は前述したように、重量百分比で20~35%のR元素と、0.5~1.5%のBと、0.1~10%のL元素と残部M元素とから構成されるが、R元素が20%以下の場合には充分な

L元素が $R_2M_{14}B$ 母相粒内で不均一に分布している希土類永久磁石であることを要旨とするものである。

これを説明すると、Nd系磁石の保磁力機構は核発生成長型であり(J. Appl. Phys. 55, 2083; 1984)、また最近の平賀、作川らによる電顕観察の結果から $Nd_2Fe_{14}B$ 磁石はその結晶粒表面を包んでいる薄くソフトなbcc相に磁壁がピン止めされるため大きな保磁力が得られるのではないかと考察している(Japan J. Appl. Phys. L 30; 1985)。通常、保磁力を増大させる効果を持つ重希土類元素やAl、V、Nd、などの元素は溶解時に他の主元素と一緒に溶解され、2:14:1化合物内に均一に分布する。これらの添加元素は2:14:1化合物の異方性磁場を増加させたり、結晶粒界近傍の形態に影響を与えることにより保磁力を増大させるものと考えられている。本発明者はこのような知見に基づき、保磁力を増大させるためには結晶粒界の近傍のみを制御すれば良い(以下これを粒界制御と称する)ことに着目し、研究を進め

保磁力が確保できず、35%以上のときは酸化が著しく取扱いが困難になる。Bが0.5%以下のときは高い保磁力が得られず、1.5%以上のときは残留磁束密度の低下が大きいため好ましくない。さらに、Lが0.1%以下のときは保磁力の増大効果がなく、10%以上では残留磁束密度の低下が大きいため、上記割合にすることが必要である。M元素はFeまたはFeとCoとの混合物であり、Coとの使用割合が増加するとキュリー点が上昇するので、可逆温度係数が改善される。

前述のR元素としては、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Euの内の少なくとも1種以上の軽希土類元素が用いられ、他方、L元素としてはGd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu、Yの重希土類元素およびAl、Ti、V、Nb、Moの内の少なくとも1種以上の元素が選択使用される。

次に、本発明の具体的態様を実施例により説明する。

実施例1

それぞれ純度99.9%のNd、Feメタルと、純度99.5%のBとを、 $Nd_{14}Fe_{79}B_7$ の原子配合比となるように秤量し、また別にそれぞれ純度99.9%のDy、Feメタルを $DyFe_2$ となるように秤量した。両者を別々に高周波炉で溶解固化した後、 $Nd_{14}Fe_{79}B_7$ インゴットと $DyFe_2$ インゴットとを重量比で98:2の割合で一揃に粗粉碎した後、n-ヘキサンを溶媒としてボールミル中で5時間微粉碎した。得られた平均粒径 $3.5\mu m$ の微粉を15kOeの磁場中で配向させながら、 $1t/cm^2$ の圧力でプレス成形した。この成形体を、真空引き後Arガスで置換した炉中で、1050℃で1時間焼結し、急冷後550℃で1時間熱処理した。

比較のため、上記焼結体と同じ組成になるようにNd、Dy、Fe、Bの各メタルを秤量し、高周波炉で溶解した後、同一条件で粉碎、プレス、焼結、熱処理をした。

両焼結体についてEPMA（電子プローブ微小分析機）法によりNdとDyのラインプロファイル測定したところ第1図および第2図に示す結

果が得られた。また、この磁気特性を測定したところ第1表に示す結果が得られた。

第 1 表

磁気特性	残留磁束密度 kG	保磁力 kOe	最大エネルギー積 MGOe
実施例	12.3	18.0	38.0
比較例	11.9	14.5	33.5

第1図では左端と中央々右手に白色のNdリッチ相があり、黒色部が $Nd_2Fe_{14}B$ 母相であって、Dyは粒界近傍に偏在し、中央部には殆んど存在していない。

これに対し、第2図では中央の白色部がNdリッチ相であり、左右の黒色部が $Nd_2Fe_{14}B$ 母相であって、Dyが母相粒内に均一に分布している。

この結果と第1表に示した磁気特性の試験結果とを対照すると、添加元素の母相への分布状態が磁気特性、とくに保磁力の向上と残留磁束密度の

保持に影響していることがわかる。

実施例2

それぞれ純度99.9%のNd、Fe、Coのメタルと、純度99.5%のBメタルとを、 $Nd_{15}(Fe_{82}Co_{18})_{78}B_7$ の原子配合比となるように秤量し、高周波炉で一揃に溶解、固化した。このインゴットを粗粉碎後、これに、さらにAl微粉0.5%と Tb_4O_7 微粉3%とを加えて混合し、ジェットミルで微粉碎して平均粒径 $3\mu m$ の微粉とした。これを15kOeの磁場中で配向させながら、 $1t/cm^2$ の圧力でプレス成形した。この成形体を1070℃で1時間、Arガス中で焼結後急冷し、600℃で2時間熱処理した。

比較のため、Nd、Fe、Co、Bの各メタル、Al微粉、 Tb_4O_7 微粉を上記焼結体と同一の組成になるように秤量後、まとめて溶解し、同じ方法で焼結体を作成した。両焼結体の磁気特性を測定したところ、第2表に示す結果が得られた。

第 2 表

磁気特性	残留磁束密度 kG	保磁力 kOe	最大エネルギー積 MGOe
実施例	11.9	24.5	33.9
比較例	11.7	17.0	32.5

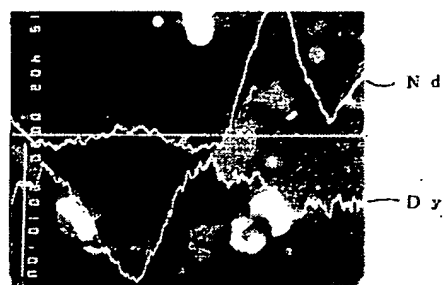
（発明の効果）

以上の様に本発明による希土類永久磁石は、高価な重希土類元素の添加量の増加によらずに、磁気特性、とくに保磁力と残留磁束密度の向上を図ったものであるため、各種電気、電子機器材料として広汎な用途の拡大が期待される。

4. 図面の簡単な説明

第1図および第2図は、それぞれ実施例1に示される本発明および従来の方法により得られた磁石についてEPMA（電子プローブ微小分析機）法による金属組織と、その中央線上でのNdおよびDyのラインプロファイルの測定結果を示す写真である。

第 1 図



第 2 図

